

[First Hit](#) [Previous Doc](#) [Next Doc](#) [Go to Doc#](#)

End of Result Set

☐ [Generate Collection](#) [Print](#)

L3: Entry 2 of 2

File: JPAB

Sep 12, 1984

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 59161448 A

TITLE: STABILIZED POLYMERIC MATERIAL COMPOSITION

Abstract Text (2):

CONSTITUTION: 100pts.wt. of a polymeric material is compounded with 0.001~ 5pts.wt. of a compound of formula I (R1 is 1~8C alkyl; R2 is H or 1~8C alkyl; X is group of formula II~V; R3 is 1~5C alkyl; Y is group of formula VI or VII; n is 0~5). The composition is preferably compounded further with a phenolic antioxidant, a sulfur-based antioxidant, a phosphorus-containing compound such as phosphite, and a photo-stabilizer.

Current US Cross Reference Classification (2):525/167[Previous Doc](#) [Next Doc](#) [Go to Doc#](#)

⑬ 日本国特許庁 (JP)
⑭ 公開特許公報 (A)

⑮ 特許出願公開

昭59—161448

① Int. Cl.³
C 08 K 5/34
// C 07 D 211/46
491/113

識別記号
C A B

庁内整理番号
6681—4 J
7138—4 C
8115—4 C

③ 公開 昭和59年(1984)9月12日

発明の数 1
審査請求 未請求

(全 9 頁)

④ 安定化高分子材料組成物

⑥ 特 願 昭58—37122

⑦ 出 願 昭58(1983)3月7日

⑧ 発 明 者 皆川源信
浦和市白幡五丁目2番13号アデ
カ・アーガス化学株式会社内

⑨ 発 明 者 中原豊
浦和市白幡五丁目2番13号アデ
カ・アーガス化学株式会社内

⑩ 発 明 者 平井文二

浦和市白幡五丁目2番13号アデ
カ・アーガス化学株式会社内

⑪ 発 明 者 高橋雅之

浦和市白幡五丁目2番13号アデ
カ・アーガス化学株式会社内

⑫ 出 願 人 アデカ・アーガス化学株式会社
東京都荒川区東尾久八丁目4番
1号

⑬ 代 理 人 弁理士 羽鳥修

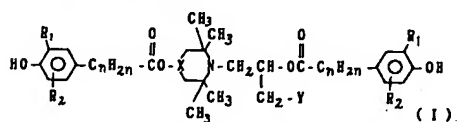
明 細 書

1. 発明の名称

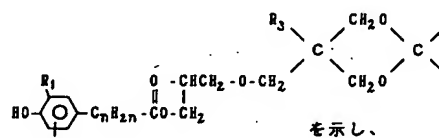
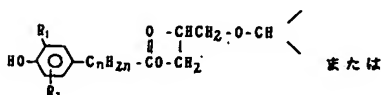
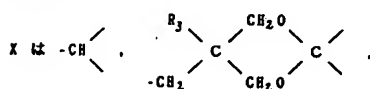
安定化高分子材料組成物

2. 特許請求の範囲

高分子材料100重量部に、次の一般式(1)で表される化合物0.001~5重量部を添加してなる安定化高分子材料組成物。

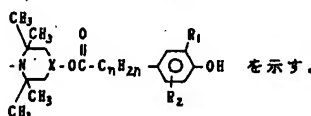


(上式中、R₁は炭素数1~8のアルキル基を示し、R₂は水素原子または炭素数1~8のアルキル基を示す。



R₃は炭素数1~5のアルキル基を示す。

Yは $-\text{OC}-\text{C}_n\text{H}_{2n}-\text{C}_6\text{H}_3(\text{OH})_2$, または



nは0~5を示す。))

3. 発明の詳細な説明

本発明は耐光性及び酸化安定性の改善された高分子材料組成物、詳しくは、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジル基を有するポリオールを含むフェノールカルボン酸エステルを含有せしめてなる安定化高分子材料組成物に関する。

ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル等の高分子材料は一般に光の照射及び酸化により劣化し、変色あるいは機械的強度の低下等を引き起こし、長期の使用に耐えないことが知られている。

そこで高分子材料の劣化を防止するために、従来種々の安定剤が単独で、あるいは数種を組み合わせ用いられており、アルキル化ヒドロキシフェニルアルカン酸のエステル等のフェノール系抗酸化剤及びヒンダードピペリジン系の光安定剤の組合せも知られている。

また、近年、同一分子中にフェノール系抗酸化剤基とヒンダードピペリジン基を結合させることが試みられており、アルキル化ヒドロキシフェニルアルカン酸と2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン基を有するアルコールとのエステルも提案されている。

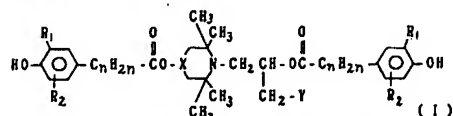
例えば、特開昭48-65182号公報には2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジノールとのエステルが、特開昭55-9064号公報

には2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジノールのアルキレンオキシド付加物とのジエステルが、特開昭55-11507号公報には2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリドンのスピロケタールアルコールのアルキレンオキシド付加物とのジエステルが、特開昭55-36482号公報にはアルキレンビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジノール)のジエステルが開示されている。また特開昭57-136567号公報には2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ビペリジノールのアルキル化ヒドロキシフェニルアルカン酸のエステルのグリシド付加物が開示されている。

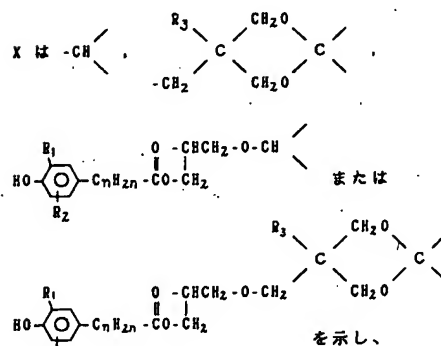
しかしながら、これら公報記載の化合物はいずれもモノエステルあるいはジエステル化合物であり、その安定化効果が不充分であり、また比較的分子量化合物である為、高分子材料の高温加工時に揮散したり、水あるいは有機溶媒によって抽出されてしまう等の欠点があり、実用上不満足なものであった。

本発明者等は、安定化能に優れ、また揮発性、耐水性等の良好な化合物を見い出すべく鋭意検討を重ねた結果、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン基を有する3価以上のポリオールと特定の含フェノールカルボン酸とのエステルが良好な性能を有することを見出し、本発明を完成したものである。

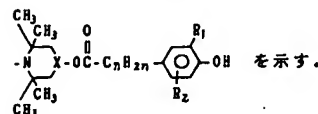
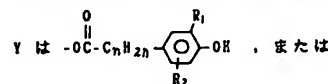
即ち、本発明は、高分子材料100重量部に、次の一般式(1)で表される化合物0.001~5重量部を添加してなる安定化高分子材料組成物を提供するものである。



(上式中、 R_1 は炭素数1~8のアルキル基を示し、 R_2 は水素原子または炭素数1~8のアルキル基を示す。



R_3 は炭素数1~5のアルキル基を示す。



n は0~5を示す。)

以下本発明で用いられる前記一般式(1)で表される化合物について詳述する。

R₁及びR₂で表されるアルキル基としてはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、第2ブチル、第3ブチル、アミル、第3アミル、ヘキシル、オクチル、第3オクチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、1-メチルシクロヘキシル等があげられ、R₃で表されるアルキル基としては、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、アミル等があげられる。

従って、本発明で用いられる前記一般式(1)で表される化合物としては次の表—1に示すような化合物があげられる。尚、表中、

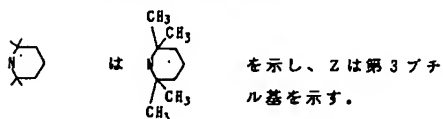
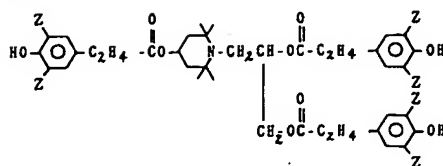
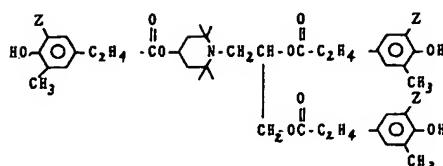


表 — 1

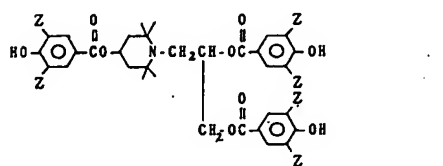
No 1



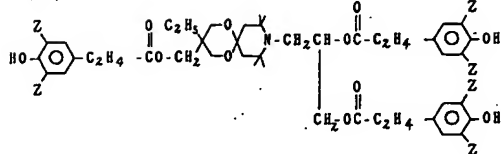
No 2



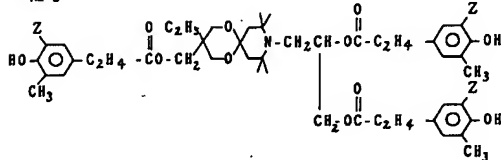
No 3



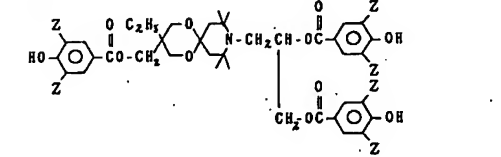
No 4



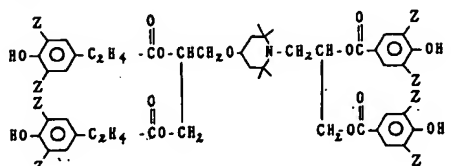
No 5



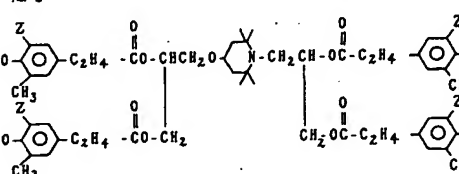
No 6



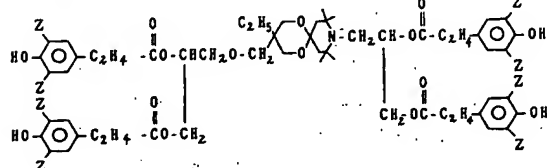
No 7

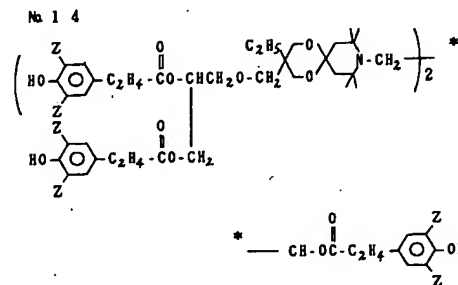
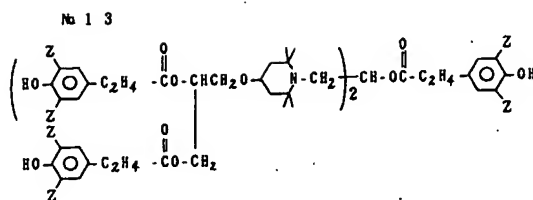
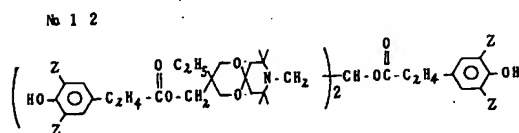
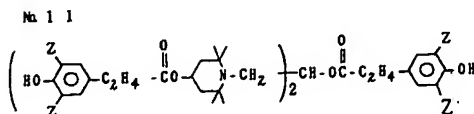
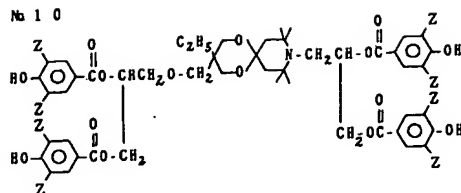


No 8

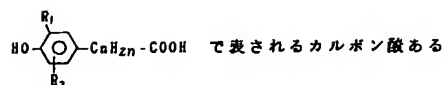


No 9





本発明で用いられる前記一般式(1)で表される化合物は、例えば、2, 2', 6, 6'-テトラメチルビペリジル基を有するポリオールと式



いはその低級アルキルエステルを反応させることによって容易に製造することができる。

次に、本発明で用いられる化合物の具体的な合成例を記すが、本発明は下記の合成例によって制限を受けるものではない。

合成例

表—1、№1化合物の合成

N-(2', 3'-ジヒドロキシプロピル)-2, 2', 6, 6'-テトラメチル-4-ビペリジノール1.85g、メチル-3-(3', 5'-ジメチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート7.7g及びリチウムアミド0.06gをとり、窒素気流下120~130℃で12時間加熱攪拌した。冷却後、酢酸0.5g及びキシレン50mlを加え攪拌後、水洗、乾燥した。キシレンを除去した後メタノールにより再結晶し、融点107~110℃の白色粉末の生成物(目的物)を得た。

本発明は、前記一般式(1)で表される化合物を高分子材料に添加してその耐光性を改善するものであり、その添加量は、通常、高分子材料100重量部に対し0.001~5重量部、好ましくは0.01~3重量部である。

本発明における耐光性改善の対象となる高分子材料としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリ-3-メチルブテン、などのα-オレフィン重合体またはエチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-プロピレン共重合体などのポリオレフィンおよびこれらの共重合体、ポリ塩化ビニル、ポリ臭化ビニル、ポリフッ化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレン、ポリフッ化ビニリデン、臭素化ポリエチレン、塩化ゴム、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、塩化ビニル-エチレン共重合体、塩化ビニル-プロピレン共重合体、塩化ビニル-スチレン共重合体、塩化ビニル-イソブチレン共重合体、塩化ビニル-塩化ビニリデン共重合体、塩化ビニル-スチレン-無水マレイン酸

三元共重合体、塩化ビニル—スチレン—アクリロニトリル共重合体、塩化ビニル—ブタジエン共重合体、塩化ビニル—イソブレン共重合体、塩化ビニル—塩素化プロピレン共重合体、塩化ビニル—塩化ビニリデン—酢酸ビニル三元共重合体、塩化ビニル—アクリル酸エステル共重合体、塩化ビニル—マレイン酸エステル共重合体、塩化ビニル—メタクリル酸エステル共重合体、塩化ビニル—アクリロニトリル共重合体、内部可塑化ポリ塩化ビニルなどの含ハロゲン合成樹脂、石油樹脂、クマロン樹脂、ポリスチレン、ポリ酢酸ビニル、アクリル樹脂、スチレンと他の単量体（例えば無水マレイン酸、ブタジエン、アクリロニトリルなど）との共重合体、アクリロニトリル—ブタジエン—スチレン共重合体、アクリル酸エステル—ブタジエン—スチレン共重合体、メタクリル酸エステル—ブタジエン—スチレン共重合体、ポリメチルメタクリレートなどのメタクリレート樹脂、ポリビニルアルコール、ポリビニルホルマール、ポリビニルブチラール、直鎖ポリエステル、ポリフェニ

レンオキシド、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリウレタン、縮醛系樹脂、あるいはフェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、シリコン樹脂などをあげることができる。更に、イソブレンゴム、ブタジエンゴム、アクリロニトリル—ブタジエン共重合ゴム、スチレン—ブタジエン共重合ゴムなどのゴム類やこれらの樹脂のブレンド品であってもよい。

また、過酸化物あるいは放射線等によって架橋させた架橋ポリエチレン等の架橋重合体及び発泡剤によって発泡させた発泡ポリスチレン等の発泡重合体も包含される。

本発明の組成物にさらに周知のフェノール系の抗酸化剤を添加することによって酸化安定性をさらに改善することができる。これらのフェノール系抗酸化剤としては例えば、2, 6—ジ—第3ブチル—p—クレゾール、2, 6—ジフェニル—4—オクトキシフェノール、ステアリル—(3, 5—ジ—メチル—4—ヒドロキシベンジル) チオグ

リコレート、ステアリル—p—(4—ヒドロキシ—3, 5—ジ—第3ブチルフェニル) プロピオネート、ジステアリル—3, 5—ジ—第3ブチル—4—ヒドロキシベンジルホスホネート、2, 4, 6—トリス(3', 5'—ジ—第3ブチル—4—ヒドロキシベンジルチオ) 1, 3, 5—トリアジン、ジステアリル(4—ヒドロキシ—3—メチル—5—第3ブチル) ベンジルマロネート、2, 2'—メチレンビス(4—メチル—6—第3ブチルフェノール)、4, 4'—メチレンビス(2, 6—ジ—第3ブチルフェノール)、2, 2'—メチレンビス(6—(1—メチルシクロヘキシル) p—クレゾール)、ビス(3, 5—ビス(4—ヒドロキシ—3—第3ブチルフェニル) ブチリックアシド) グリコールエステル、4, 4'—ブチリデンビス(6—第3ブチル—m—クレゾール)、2, 2'—エチリデンビス(4, 6—ジ—第3ブチルフェノール)、2, 2'—エチリデンビス(4—第2ブチル—6—第3ブチルフェノール)、1, 1, 3—トリス(2—メチル—4—ヒドロキ

シ—5—第3ブチルフェニル) ブタン、ビス(2—第3ブチル—4—メチル—6—(2—ヒドロキシ—3—第3ブチル—5—メチルベンジル) フェニル) テレフタレート、1, 3, 5—トリス(2, 6—ジメチル—3—ヒドロキシ—4—第3ブチル) ベンジルイソシアヌレート、1, 3, 5—トリス(3, 5—ジ—第3ブチル—4—ヒドロキシベンジル)—2, 4, 6—トリメチルベンゼン、テトラキス(メチレン—3—(3, 5—ジ—第3ブチル—4—ヒドロキシフェニル) プロピオネート) メタン、1, 3, 5—トリス(3, 5—ジ—第3ブチル—4—ヒドロキシベンジル) イソシアヌレート、1, 3, 5—トリス((3, 5—ジ—第3ブチル—4—ヒドロキシフェニル) プロピオニルオキシエチル) イソシアヌレート、2—オクチルチオ—4, 6—ジ(4—ヒドロキシ—3, 5—ジ—第3ブチル) フェノキシ—1, 3, 5—トリアジン、4, 4'—チオビス(6—第3ブチル—m—クレゾール) などのフェノール類及び4, 4'—ブチリデンビス(2—第3ブチル—5—メ

チルフェノール)の炭酸オリゴエステル(例えば重合度2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10など)の多価フェノール炭酸オリゴエステル類が、あげられる。

本発明の組成物にさらに硫黄系の抗酸化剤を加えてその酸化安定性の改善をはかることもできる。これらの硫黄系抗酸化剤としては、例えばジラウリル—、ジミリスチル—、ジステアリル—などのジアルキルチオジプロピオネート及びブチル—、オクチル—、ラウリル—、ステアリル—などのアルキルチオプロピオン酸の多価アルコール(例えばグリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、トリスヒドロキシエチルイソシアヌレート)のエステル(例えばペンタエリスリトールテトララウリルチオプロピオネート)があげられる。

本発明の組成物に、さらにホスファイト等の含リン化合物を添加することによって、耐光性及び耐熱性を改善することができる。この含リン化合物としては、例えばトリオクチルホスファイト、

トリラウリルホスファイト、トリデシルホスファイト、オクチル—ジフェニルホスファイト、トリス(2, 4—ジ—第3ブチルフェニル)ホスファイト、トリフェニルホスファイト、トリス(ブトキシエチル)ホスファイト、トリス(ノニルフェニル)ホスファイト、ジステアリンペンタエリスリトールジホスファイト、テトラ(トリデシル)—1, 1, 3—トリス(2—メチル—5—第3ブチル—4—ヒドロキシフェニル)ブタンジホスファイト、テトラ(C₁₂~15混合アルキル)—4, 4'—イソプロピリデンジフェニルジホスファイト、テトラ(トリデシル)—4, 4'—ブチリデンビス(3—メチル—6—第3ブチルフェノール)ジホスファイト、トリス(3, 5—ジ—第3ブチル—4—ヒドロキシフェニル)ホスファイト、トリス(モノ・ジ混合ノニルフェニル)ホスファイト、水素化—4, 4'—イソプロピリデンジフェノールポリホスファイト、ビス(オクチルフェニル)・ビス(4, 4'—ブチリデンビス(3—メチル—6—第3ブチルフェノール))・1, 6

—ヘキサンジオールジホスファイト、フェニル・4, 4'—イソプロピリデンジフェノール・ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 4—ジ—第3ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 6—ジ—第3ブチル—4—メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、トリス(4, 4'—イソプロピリデンビス(2—第3ブチルフェノール))ホスファイト、フェニル・ジイソデシルホスファイト、ジ(ノニルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、トリス(1, 3—ジ—ステアロイルオキシイソプロピル)ホスファイト、4, 4'—イソプロピリデンビス(2—第3ブチルフェノール)・ジ(ノニルフェニル)ホスファイト、9, 10—ジ—ハイドロ—9—オキサ—10—フォスファフェナンスレン—10—オキサイド、テトラキス(2, 4—ジ—第3ブチルフェニル)—4, 4'—ビフェニレンジホスホナイトなどがあげられる。

本発明の組成物に他の光安定剤を添加すること

によってその耐光性をさらに改善することができる。これらの光安定剤としては、例えば、2—ヒドロキシ—4—メトキシベンゾフェノン、2—ヒドロキシ—4—n—オクトキシベンゾフェノン、2, 2'—ジ—ヒドロキシ—4—メトキシベンゾフェノン、2, 4—ジヒドロキシベンゾフェノン等のヒドロキシベンゾフェノン類、2—(2'—ヒドロキシ—3'— ϵ —ブチル—5'—メチルフェニル)—5—クロロベンゾトリアゾール、2—(2'—ヒドロキシ—3'—5'—ジ— ϵ —ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2—(2'—ヒドロキシ—3'—5'—ジ— ϵ —アミルフェニル)ベンゾトリアゾール等のベンゾトリアゾール類、フェニルサリシレート、p— ϵ —ブチルフェニルサリシレート、2, 4—ジ— ϵ —ブチルフェニル—3, 5—ジ— ϵ —ブチル—4—ヒドロキシベンゾエート、ヘキサデシル—3, 5—ジ— ϵ —ブチル—4—ヒドロキシベンゾエート等のベンゾエート類、2

、2'-チオビス(4-ヒドロキシルフェノール)Ni塩、(2, 2'-チオビス(4-ヒドロキシルフェノール)-n-ブチルアミンNi、(3, 5-ジ-ヒドロキシル-4-ヒドロキシベンジル)ホスホン酸モノエチルエステルNi塩等のニッケル化合物類、 α -シアノ- β -メチル- β -(p-メトキシフェニル)アクリル類メチル等の置換アクリロニトリル類及びN-2-エチルフェニル-N'-2-エトキシ-5-第3ブチルフェニルシュウ酸ジアミド、N-2-エチルフェニル-N'-2-エトキシフェニルシュウ酸ジアミド等のシュウ酸ジアニド類があげられる。

その他必要に応じて、本発明の組成物には重金属不活性化剤、造核剤、金属石けん、有機錯化合物、可塑剤、エポキシ化合物、顔料、充填剤、発泡剤、帯電防止剤、難燃剤、清剤、加工助剤等を包含させることができる。

本発明によって安定化された高分子材料は極めて多様な形で、例えばフィルム、繊維、テープ、シート、各種成型品として使用でき、また、塗料

、ラッカー用結合剤、接着剤、パテ及び写真材料における基材としても用いることができる。

次に本発明を実施例によって具体的に説明する。しかしながら、本発明はこれらの実施例によって限定されるものではない。

実施例 1

ポリプロピレン 100 重量部

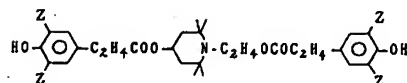
安定剤(表-2) 0.2

上記配合にて厚さ0.3mmのプレスシートを作成し、高圧水銀ランプを用いての耐光性試験及び160℃のギヤーオープン中での耐熱性試験を行った。また80℃の熱水に15時間浸漬後のシートについても同様の試験を行った。その結果を表-2に示す。

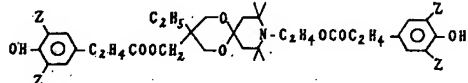
表 - 2

No	安定剤	耐 光 性		耐 熱 性	
		オリジナルシート	浸漬シート	オリジナルシート	浸漬シート
比較例 1-1	A*1	時間120	時間96	時間256	時間216
1-2	B*2	120	104	256	232
1-3	C*3	144	120	232	208
実施例 1-1	No. 1(表-1)	288	264	384	360
1-2	No. 3(“)	240	216	304	288
1-3	No. 4(“)	288	272	376	352
1-4	No. 5(“)	264	240	360	336
1-5	No. 8(“)	248	224	376	360
1-6	No. 10(“)	224	200	352	336
1-7	No. 11(“)	296	272	328	312
1-8	No. 14(“)	288	248	336	328

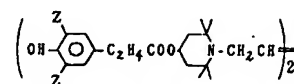
*1: A:



*2: B:



*3: C:



(以下の各実施例においても同じ)

実施例 2

通常の安定剤は樹脂の高温加工時に揮発、分解等によりその効果が著しく失われることが知られている。

本実施例では押し出し加工を繰返し行うことにより高温加工による影響を確かめた。

次の配合により樹脂と添加剤をミキサーで5分

表 — 3

No	安定剤	耐光性		耐熱性	
		1回押し出し	5回押し出し	1回押し出し	5回押し出し
比較例 2-1	A	時間 72	時間 72	時間 280	時間 264
2-2	B	72	72	264	256
2-3	C	72	72	264	240
実施例 2-1	No 1 (表-1)	152	144	432	424
2-2	No 2 (〃)	144	128	408	384
2-3	No 4 (〃)	144	144	424	408
2-4	No 6 (〃)	120	104	376	336
2-5	No 7 (〃)	128	120	400	376
2-6	No 9 (〃)	128	128	424	408
2-7	No 12 (〃)	144	128	384	360
2-8	No 13 (〃)	152	144	408	384

間混合した後、押し出し機でコンパウンドを作成した。(シリンダー温度230℃、240℃、ヘッドダイス温度250℃、回転数20rpm)押し出しを5回繰り返し行った後このコンパウンドを用いて試験片を射出成形機で作成した。(シリンダー温度240℃、ノズル温度250℃、射出圧475kg/cm²)

得られた試験片を用いて高圧水銀ランプでの耐光性試験及び160℃のオープン中での耐熱性試験をおこなった。また、押し出し1回のものについても同様に試験した。その結果を表-3に示す。

<配合>

エチレン-プロピレン共重合樹脂 100重量部
ステアリン酸カルシウム 0.2
ジラウリルチオジプロピオネート 0.3
安定剤(表-3) 0.1

表 — 4

No	安定剤	耐光性	耐熱性
		時間	時間
比較例 3-1	A	660	320
3-2	B	640	312
3-3	C	700	312
実施例 3-1	No 1 (表-1)	920	448
3-2	No 4 (〃)	900	424
3-3	No 7 (〃)	840	400
3-4	No 10 (〃)	860	424
3-5	No 11 (〃)	940	432
3-6	No 14 (〃)	860	448

実施例 3

ポリエチレン 100 重量部
Ca-ステアレート 1.0
安定剤(表-4) 0.2

上記配合物を混練後プレスして厚さ0.5mmのシートを作成した。このシートを用いてウエザオメーター中で耐光性を測定し、脆化するまでの時間を測定した。また、150℃のオープン中での熱安定性も測定した。その結果を表-4に示す。

実施例 4

ABS樹脂 100 重量部
安定剤 (表-5) 0.3

上記配合物をロール練り後プレスして厚さ3mmのシートを作成した。このシートを用いウエザオメーターで800時間照射後の抗張力残率を測定した。また、210℃で10分間加熱後のシートの色を測定し、10段階にわけて評価した。尚、1は白色を示し、10は褐色を示す。その結果を表-5に示す。

表 - 5

No.	安 定 剤	抗張力残率	シートの色
比較例 4-1	なし	38%	9
4-2	A	51	5
4-3	B	49	5
4-4	C	52	6
実施例 4-1	No. 2 (表-1)	67	3
4-2	No. 4 (")	69	2
4-3	No. 8 (")	65	4
4-4	No. 9 (")	65	3
4-5	No. 12 (")	61	2
4-6	No. 13 (")	63	3

実施例 5

ポリウレタン樹脂 100 重量部
(旭電化製 U-100)

Ba-ステアレート 0.7
Zn-ステアレート 0.3
安定剤 (表-6) 0.3

上記配合物を70℃で5分間ロール上で混練し、120℃で5分間プレスして厚さ0.5mmのシートを作成した。このシートをフェードメーターにて50時間照射後の伸び残率を測定した。その結果を表-6に示す。

表 - 6

No.	安 定 剤	伸び残率
比較例 5-1	A	48%
5-2	B	46
5-3	C	51
実施例 5-1	No. 1 (表-1)	65
5-2	No. 5 (")	62
5-3	No. 7 (")	64
5-4	No. 11 (")	65
5-5	No. 12 (")	62